

特集

地球環境の変容と保全

酸性雨の発生機構とその防止策

Acid Rain Formation and its Prevention Strategy

植田 洋 匡*

Hiromasa Ueda

1. はじめに

いま、大都市、工業地帯などの大規模発生源地域で、窒素酸化物、二酸化硫黄、炭化水素などのガス状の一次汚染物質が大量に排出され、これらを大量に含んだ汚染気塊が長距離輸送される場合を考える。図-1に示したように、ガス状一次汚染物質は輸送、拡散される間に、まず気相反応により、一酸化窒素NOが二酸化窒素NO₂になり、発生源地域の風下側で都市型二酸化窒素汚染を引き起こす。さらに、1～数時間の光化学反応を経て、酸化性の強いガス状汚染物質であるオゾン、過酸化水素、PAN (peroxyacylnitrate)、OHラジカル等を生じ、暖候期には輸送経路に沿って光化学オキシダント汚染を引き起こす。

このときNO_x、SO₂はOHラジカル等によって酸化されて消滅し、代りに硝酸、硫酸が生成される。また、炭化水素は酸化されてアルデヒドやカルボン酸になる。これらの一部は粒子化して二次生成粒子とよばれる微小粒子になり、光化学スモッグに代表されるような浮遊粒子状汚染物質汚染を引き起こす。

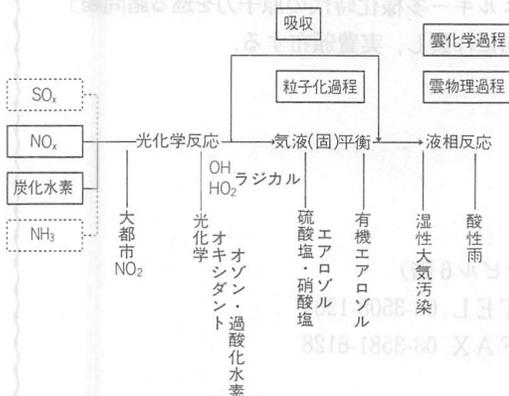


図-1 大気汚染の種々の形態

これら一次、二次汚染物質の一部は地表に拡散して、植物や土壌に吸着され、また水面で吸収される。これを乾性沈着とよぶ¹⁾。また、一部は雲粒、雨滴、霧水に取り込まれて²⁾地表に降下する。これは湿性沈着とよばれる。

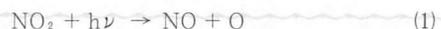
雲水、雨滴等に取り込まれた粒子状、ガス状汚染物質は液相でさらに反応して酸性の雨、雪、霧になる。このように酸性雨、雪、霧の生成は、気相反応、液滴への取り込み、液相反応過程をとおしておこなわれる。ここでは、一次汚染物質が長距離輸送される間に反応して最終的に酸性雨、雪、霧に至る一連の大気汚染の発生機構とそれらの現状、環境影響を概説し、その防止策を考えてみよう。

2. 酸性雨の発生機構

2.1 気相での酸化性、酸性物質の反応生成

一次汚染物質である窒素酸化物(NO_x=NO+NO₂、うちNO₂は10%程度)や二酸化硫黄は自動車やボイラーなどの燃焼機関から排出されている。炭化水素は燃焼機関のほかに、塗装、石油関連工業から多量に放出されており、テルペン類のように植物からの放出量も多い。NO_x、SO_x、炭化水素は長距離輸送されるうちに反応して、種々の酸化性物質、酸性物質を生成するが、炭化水素は多くの成分(パラフィン、オレフィン、芳香族、アセチレン系に分類される)を含んでいるため、全体の反応系は非常に複雑である^{3, 4)}。

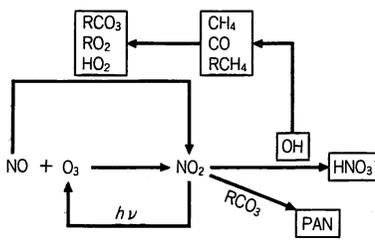
最も重要な酸化性ガス状汚染物質はオゾンである。これは主にNO₂の光化学反応によって生成される(図-2)。即ち、太陽の紫外線をうけてNO₂が光解離してNOに還る際に放出する酸素原子と、酸素分子が反応することによってできる(式(1), (2))。



清浄な空気とNO_xの系に太陽光が照射した場合に

*九州大学応用力学研究所教授

〒816 福岡県春日市春日公園6-1



(O_3 は NO_2 の光分解によって生成される。 NO_2 の生成には O_3 と過酸化ラジカルの2つの酸化経路がある。 NO_2 はさらに反応して HNO_3 、PANになる。)

図-2 オゾン生成と窒素系汚染物質の変質に関する光化学反応の模式図。

は、オゾンの消滅反応(式(3))を加えた3つの素反応が進行して平衡に達する。この場合、 NO_x が高濃度(例えば、1000ppb)あっても、平衡状態ではオゾン濃度は25ppb程度にしかならない。しかし、これに炭化水素が加わると、オゾンは大量に生成される。実際、米国西海岸では600ppb、日本でも300ppb以上(環境基準値:60ppb)を記録している。

炭化水素はまず酸素原子や O_3 、OHラジカルと反応して炭化水素の酸化ラジカルになり、これが容易に大気中の酸素分子と反応して過酸化ラジカル(RCO_3 、 RO_2 、 HO_2)になる。図-2に示したように、これがNOを NO_2 に酸化し、光解離によって O_3 を生成する。この反応経路で過酸化ラジカルは酸化ラジカルに還元されるが、これは酸素分子との反応で再び過酸化ラジカルにもどるため、一種の触媒として作用する。このようにして、 NO_2 の光解離によるオゾン生成と、このときできたNOが過酸化ラジカルによって NO_2 に還される反応が一つのサイクルを形成し、1サイクル毎にオゾンが1分子ずつ生成される。

これと併行して、炭化水素の光酸化過程で HO_2 ラジカルが生成される。例えば、アルデヒドの光分解によって生成するHCOが酸化されて HO_2 ラジカルができる。さらに、これとオゾンやNOとの反応によってOHラジカルができる。これらの HO_2 ラジカル、OHラジカルは大気微量成分の酸化反応過程を担う主要物質である。

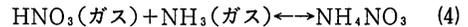
過酸化水素はOHラジカル同志の衝突などで生成される。これは酸化能の非常に強いガスで、また水に対する溶解度が非常に大きいことから肺や植物気孔に取り込まれると大きな損傷を引き起こす。また、後述するように、酸性雨の生成機構において、雲水、雨滴中の液相酸化反応を担う物質である。このようにして

酸化性のガス状汚染物質は生成され、暖候期には光化学オキシダント汚染を引き起こす。

気相での光化学反応が進行すると、 SO_2 、 NO_2 は酸化されて、硫酸、硝酸になる。硫酸の生成は気相反応だけによる経路と、異相反応による経路とがある。気相での生成は、主にOHラジカルによる SO_2 の酸化反応によって進行する。また、アルケン類炭化水素—オゾン反応の中間体であるクリーギー中間体(Criegee, $RCHO_2$)による酸化反応によっても進行する。硫酸の生成には、湿潤粒子表面などの異相反応も大きな寄与をもつと考えられる。一方、硝酸は、日中にはおもにOHラジカルによる NO_2 の酸化反応によって生成される。夜間には、 NO_2-O_3 反応で生成される NO_3 や N_2O_3 が、 HO_2 ラジカルやアルデヒドと反応することによって生成される。

2.2 粒子化過程

生成した硝酸は単体としてはガス状であるが、アンモニアなどと反応して、一部、固体粒子あるいは液滴になる。例えば、硝酸—アンモニアの系では気液固相の平衡関係が成立する⁹⁾。即ち、次の平衡関係が成立する。



高温低温条件下では硝酸、アンモニアはガス状で存在するが、常温で相対湿度が潮解限界以下では、硝酸の一部は固体粒子に、潮解湿度以上では液滴になる。

一方、硫酸は蒸気圧が低いため凝縮して、硫酸ミストとして存在する。また、アンモニアガスや塩化ナトリウム粒子があると反応して硫酸塩エアロゾルになる。これらも吸湿性の強いエアロゾルである。このように長距離輸送された汚染気塊中では無機エアロゾルが大量につくられ、浮遊粒子状物質の全質量の数10%を占める。

浮遊粒子状物質のうち、残りのほとんどは炭素系エアロゾルが占める。炭素系エアロゾルは、すすなどの元素状炭素と有機化合物を構成する有機性炭素とに分けられ、後者はさらに極性物質と非極性物質とに分けられる。二次生成される有機エアロゾルは極性物質の過半を占める。その主要物質は、ジカルボン酸や、高級アルデヒド、高級のモノカルボン酸で、炭化水素が酸化されてカルデヒドに、更に酸化されてカルボン酸に変質する過程で高沸点成分は粒子化する。

2.3 液相反応と酸性雨の生成

清浄な雨水は炭酸ガスで飽和されており、そのpH値は5.5になる。したがって、pH値がこれ以下の雨を

酸性雨とよぶ。

酸性雨の生成機構は、上空における雲の生成、発達段階における過程（雲中過程）と、雨滴となって落下中に進行する過程（雲下過程）とに分けられる。これらはそれぞれレインアウト、ウォッシュアウトとよばれる。雲中過程は、まず気相中で生成された硫酸塩、硝酸塩エアロゾル、硫酸ミスト、有機エアロゾルなどの二次粒子が、海塩粒子、土壌粒子、すすなどととも雲の凝結核を構成する過程、これに水蒸気が凝縮、昇華して成長する過程、これが合体、分裂を繰り返して雲粒、氷晶に成長する過程とからなる。このとき汚染物質が雲粒、氷晶中に取り込まれる。したがって、酸性雨中には、凝結核の段階で、すでに硫酸イオン、硝酸イオンなどの酸性物質が相当量含まれている。

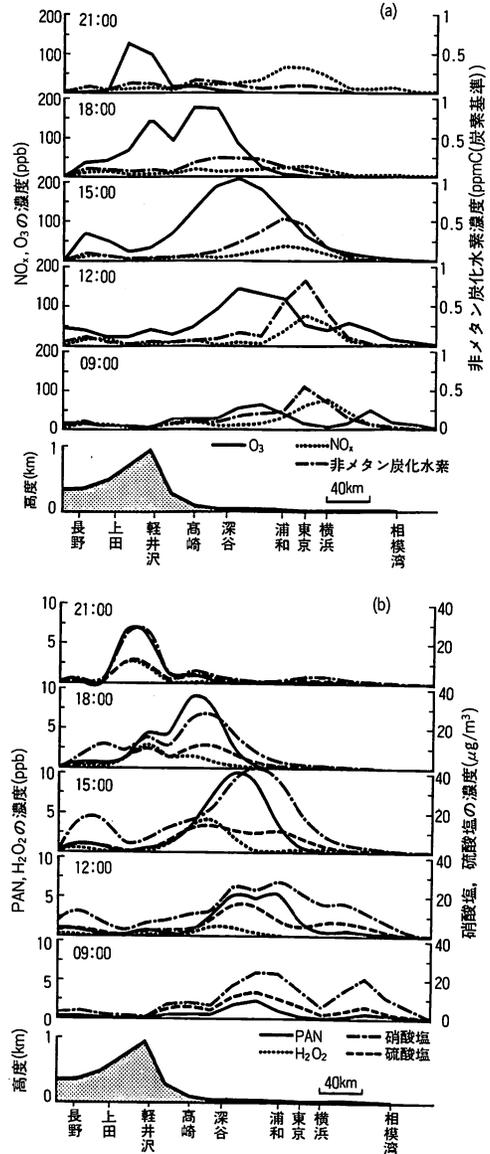
雲下過程は、硫黄系、窒素系のガス状、粒子状物質が酸化性ガスとともに雨滴に溶け込む過程²⁾と雨滴中の液相反応³⁾による硫酸、硝酸イオンの生成過程とから成る。このように液中の酸性イオンの濃度が増加すると、これとバランスするように水素イオン濃度が増大する。すなわち、pH値が低下する。

硫酸生成は、まず、SO₂の水への溶解にはじまる。SO₂が溶解すると、分子状のSO₂として存在するほか、一部イオンに解離してHSO₃⁻、SO₃²⁻になる。これらはS(IV)と総称されている。このS(IV)の酸化(S(IV)→S(VI)への変換:S(IV)、S(IV)はそれぞれ4価、6価の硫黄の総称)は主に過酸化水素とオゾンによって担われる。過酸化水素は気相の光化学反応で生成され液相に取り込まれたものが主である。光化学汚染気塊ではガス状の過酸化水素濃度は数ppbに達する。これの液滴への溶解度は極端に大きく、また液相での酸化速度も大きい。このため、雲粒の生成段階や降雨の初期段階では、過酸化水素が硫酸イオンなどのS(VI)の反応生成に、ひいては雲粒、雨滴の酸性化に主要な役割を果たす。しかし、時間経過とともに気相中の過酸化水素が急速に消費されて、その後はオゾンによる酸化反応が主要になる。S(IV)の液相酸化剤としては、気相からのOHラジカル、アルデヒド、有機過酸化物、PAN等も考えられる。

S(IV)の酸化過程で、酸素分子単独との反応は遅いが、遷移金属イオン(マンガンイオンや3価の鉄イオン)が共存するとこれらが触媒となって反応が急速に進行するといわれている。しかし、実際の酸性雨生成過程ではこれらの寄与も小さい。

一方、NO₂の溶解度がSO₂の1/100程度であるた

め、溶け込んだNO₂の液相反応が雨を酸性化する効果は小さい。むしろ、雲粒の凝結成長過程以降の段階での硝酸イオン濃度の増大には、その溶解度がNO₂より7桁も大きいガス状硝酸の溶解が決定的な役割を果たしている。寄与は小さいものの、液相反応によっても硝酸イオンはわずかながら生成されている。NO₂は液滴に溶け込むと分子状のNO₂とN₂O₄との平衡が成立し、後者が解離して水素イオン、亜硝酸イオンと硝



(a) O₃, NO_x, 非メタン炭化水素,

(b) PAN, H₂O₂, 硫酸塩, 硝酸塩, O₃の高濃度域は汚染気塊の長距離輸送に対応し内陸に移動する。

図-3 長距離輸送の経路に沿っての汚染物質の濃度分布とその時間変化。

酸イオンになる。しかし、これによる生成速度は極めて遅く、むしろ、過酸化水素やオゾンによる酸化反応が支配的な役割を果している。 2.4 酸性雨にいたる様々な大気汚染の動態

暖候期、関東甲信地域に亘る大気汚染長距離輸送⁷⁾を例にして、汚染物質の変質過程を見てみよう。汚染物質は東京湾の大規模発生源地域で排出され、関東平野を北上し、浦和を経て関東平野の奥部で西寄りに方向を変え、高崎を経て、夕刻関東山地を越え、軽井沢、さらに上田に達する。まず、液相反応や湿性沈着を伴わない晴天日について、この経路に沿っての汚染物質の変化を図-3に示した。これは数値予測結果⁸⁾で観測結果をよくあらわしている。

O₃は、日出後、光化学反応の進行とともに生成される。また、混合層の発達によって、前日から残在している上空の光化学O₃が取り込まれ、O₃濃度は8～9時頃から急上昇し、大都市域では正午頃ピークに達する。この汚染気塊が発生源の少ない関東平野の奥部に輸送される際には反応がさらに進んで、O₃濃度は浦和、高崎で100ppbを越え、碓氷峠（軽井沢）を越える頃には150ppbに達する。PANもO₃とほぼ同一の速度で生成され、その濃度はO₃濃度の1/10程度に達する。過酸化水素はオゾン、PANより生成速度が遅いが、汚染気塊が深谷、高崎間に達する15時頃には濃度が数ppbに達する。

SO₂は大規模発生源地域である横浜、東京で高濃度を示す。この汚染気塊中ではSO₂は比較的遅いスピード（2～4%/hr）で酸化されて、粒子状の硫酸塩エアロゾル、硫酸ミストになる。汚染気塊中の硝酸塩（ガス状硝酸と硝酸塩エアロゾル）の生成はO₃の生成とほぼ平行して進行する。NO_xの変換速度は日中10～15%/hrで、SO₂→SO₄²⁻変換速度の4倍に達する。これに伴ってNO_x濃度は急激に減少する。汚染気塊の

流入時には、浦和および高崎ではガス状硝酸が顕著に増加するのに対して、軽井沢では粒子化が進行して硝酸塩エアロゾルが増加する。これは浦和、高崎に比べて気温が約10℃低下し、相対湿度も上昇して前述の平衡関係がエアロゾル側に片寄ることによる。

つぎに、関東から甲信地域への大気汚染長距離輸送中に降雨がある場合の数値予測結果を表1に示した^{9,10)}。これは、輸送経路上の深谷から上田にかけて毎時1.0mm（一定強度）の降雨が13～17時に発生した場合（日中降雨）と、17～21時に発生した場合（夕刻降雨）についての結果である。長距離輸送される汚染気塊は15時に高崎に達し、18時には軽井沢を越えて中部山岳地域に侵入する。

降雨の全期間を通じての湿性沈着量を比較すると、硝酸イオンの積算沈着量は、日中降雨ではモル基準で硫酸イオンの湿性沈着量の2倍、夕刻降雨で1.5倍である。この硝酸は気相反応で生成されたもので、液相での反応生成量はごくわずかである。一方、硫酸イオンについてみると、液相反応と気相反応による生成量の比率は、日中降雨で1.4倍、夕刻降雨で5.3倍になっており、一般的にほぼ同オーダーと考えることができる。気相反応で生成されたものは、主に雲の凝結核になっている。

湿性沈着量と乾性沈着量を比較すると、硝酸イオンの場合、ガス状硝酸の乾性沈着速度が他のガス状汚染物質に比べて1桁大きいことから、硝酸イオンの乾性沈着は湿性沈着に匹敵する。一方、硫酸イオンについてみると、粒子状になった硫酸塩エアロゾルの乾性沈着速度は極端に小さいことを反映して、乾性沈着量は湿性沈着量より3桁小さい。したがって、硫酸イオンは湿性沈着によってのみ大気中から除去されると考えられる。

3. 酸性雨の現状と環境影響

我が国の降雨のpH値は、降雨加重年平均で4.4～5.1の範囲にあり、東北部、北海道を除いてほぼ一様に分布している。pHの最低値は欧州（ドイツを中心とした周辺諸国）、北米（五大湖東部）での最低値pH=4.1よりやや高い傾向にある。これに対して、降雨の汚染状態の目安と考えられる硝酸、硫酸イオンの濃度は欧米並みかそれ以上である。硫酸イオンの年間降水量の最大値は我が国では5.9g/m²、北米では4.7g/m²である。海洋起源のものを差し引いた非海洋性硫酸イオン降水量が3～4g/m²になる地域が全体の

表1 降雨時の乾性、湿性沈着量および気相反応量の比較

乾性沈着量*	湿性沈着量*	液相反応量	気相反応量*	総 量*	
				降雨前	降雨後
日中降雨					
SO ₂	1.3(22)	3.2(22)	-8.6(22)	3.6(23)	2.2(23)
SO ₄ ²⁻	2.6(20)	1.8(23)	8.6(22)	4.2(23)	3.4(23)
NO ₃ ⁻	9.7(22)	3.6(23)	2.6(18)	7.9(23)	4.9(23)
夕刻降雨					
SO ₂	1.3(22)	3.8(22)	-1.6(23)	3.1(23)	1.7(23)
SO ₄ ²⁻	1.5(20)	3.7(23)	1.6(23)	4.3(23)	3.2(23)
NO ₃ ⁻	3.5(22)	5.7(23)	4.3(19)	4.3(23)	4.0(23)

単 位：molecules。降雨領域：深谷～上田。
 降雨期間：13～17時（日中降雨）、17～21時（夕刻降雨）。
 カッコは10の指数。例えば1.3(22)=1.3×10²²。●は降雨期間中全計算領域（相模湾～長野）についての値。

1/4を占める。年間降水量は豪雪、豪雨地域である北陸地方、九州南部で特に多く、年間降雪、降雨量を反映したものになっている。

硝酸イオンの年間降水量についても同様で、北米の最大濃度地域に匹敵する値（年間 $2.5\text{g}/\text{m}^2$ ）になる地域が北陸、九州南部と大規模発生源地域（東京首都圏、京阪神）に存在する。硝酸塩と硫酸塩の比は、日本ではモル基準で1よりやや大きく、欧州、北米ではやや小さい。これは NO_x 、 SO_x の排出量の比を反映している。

このように、我が国では、硫酸、硝酸イオンの降水量は大きいものの、pH値は欧米より高い。これは同時にアンモニウム、カルシウム・イオンなどのアルカリ成分が多く含まれ、硫酸、硝酸を中和しているためと考えられる。実際、アンモニウム、カルシウムイオンの濃度は北米に比べて数倍多く、これが我が国の酸性雨の大きな特徴である。

酸性の二次汚染物質の影響としては、人体、土壌、湖沼、植物、建築物への影響が考えられる。汚染された雨による被害は、日本においては、人体影響として現れた。1973年に静岡、山梨で、1974～75年には関東地方全域で、目や皮膚に刺激性の痛みをあたえる霧雨が降り被害届者が数万人に及んで、湿性大気汚染と呼ばれた。原因物質が硫酸、硝酸、ギ酸などの酸性物質か過酸化水素、アルデヒドなどの酸化性物質かはいまだに不明で、その後は被害もなく因果関係も未解決のまま現在にいたっている。

酸性の雨による環境影響としては、湖沼、土壌への影響が指摘されている。河川、湖沼水のpH値はアルカリ度に強く依存しており酸性物質の添加は、pH値が0.7くらいまでは炭酸塩等による緩衝作用のために酸性物質の添加はアルカリ度の減少を招くだけでpH値の減少には直接結びつかない。しかし、アルカリ度が小さくなると酸性物質の添加がpH値の急減を招く。pH値7.0以下になって酸性化が進むと、湖底等からの金属の溶出が加速され、特に、pH値が4.5になってアルミニウムが溶解しだすと、これが魚類の生殖機構に作用して繁殖を停止させる。このpH値が魚類絶滅の一つの限界点である。さらに酸性化が進むと魚のカルシウム代謝や餌になる有機物の化学変化に影響が現れる。

湖沼の酸性化は北欧、北米で早くから指摘されている。たとえば、ノルウェーでは20%の湖沼で、pH値の低下から魚貝類、プランクトンが死滅しているとの

報告がある。我が国の場合、pHは5～7付近で、酸性の雨の影響は顕在化していないとされているが、水質汚濁の進んでいない河川源流域では、河川水、湖水のpH値に経年的な低下のみられる地域も存在し、これが河川、湖沼の酸性化の兆候とみることもできる。

酸性のガス状、粒子状汚染物質や酸性雨、雪、霧は建物や石像等の人工物にも深刻な被害を及ぼしている。アテネではパルテノン神殿や石像など古代遺跡の表面の溶解が進行している。特に、大理石や花こう岩表面の損傷は深刻である。また、近代建築物においても、コンクリートの亀裂から浸透した酸性雨がコンクリートを中性化させ、その強度を大幅に減少させている。

森林被害は西欧を中心にヨーロッパの全域に拡大しており、森林被害面積はオランダ、西独、スイスでいずれも全森林面積の50%を越している。また、西独での被害は、1982年に全森林面積の8%であったのが、1983年に34%、1985年には55%と急速に拡大している。我が国でも、関東甲信地方、関西瀬戸内地方の一部でスキの衰退が進行している。これら森林被害については、当初酸性雨の影響と考えられたが、最近ではガス状の酸化性物質あるいは、酸化性物質と酸性物質との複合作用と考えられている。

4. 排出削減対策

酸性雨対策としては、降雨の酸性化を抑制するための大気汚染物質の排出削減対策と酸性化した土壌や湖沼の復元対策が考えられている。後者は石灰やアンモニア等の散布による土壌、湖沼水の中和などである。

我が国では、この20年間工場や自動車に対する強力な排出規制が行なわれてきた。その結果、工場排出の代表的な一次汚染物質である SO_2 については排出規制効果があらわれて年平均濃度が1/5～1/6に減少している。 NO_x 濃度は、この期間中全国平均で10%程度減少している。非メタン炭化水素については詳細な調査はないが、オイルショック直後に20～30%減少した後、微減の傾向が続いていると考えられる。これら一次汚染物質排出量の変化が二次汚染物質濃度にどのように反映されるかをみれば、今後採るべき排出削減の効果を推測できる。

光化学オキシダント濃度は、オイルショック直後に急減したが、その後は横ばい状態である。 NO_2 濃度は横ばいから最近では微増の傾向にあり、 NO 濃度の減少傾向とは対照的である。酸性雨の状況も、硫酸イオンは1970年前後をピークにそれ以降20%程度減少して

いる。しかし、硝酸イオンはこの期間微増傾向にある。これに対応して、pH値は1981年頃まで増大して酸性雨は改善傾向にあったが、この10年間横遣いで推移している。

このように、大気汚染物質の排出削減は二次汚染物質濃度に比例的な低下をもたらしていない。上記の暖候期関東甲信地域の大気汚染長距離輸送を対象とした試算¹⁰⁾でも、一次汚染物質の排出削減が一連の大気汚染の抑制に及ぼす効果は複雑である。その効果は非線形であり、排出削減がかえって特定汚染物質の濃度増加を招く場合もある。また、一次汚染物質に含まれる天然起源物質（特に植物起源の炭化水素）の比率、発生源からの距離などによっても排出削減効果は大きく異なる。これは、汚染物質の気相反応、粒子化、液相反応等の諸過程と、この間に起きる個々の汚染物質の沈着が複雑な系を構成しているためである。したがって、今後、個々の素過程と一連の大気汚染の濃度を正確に再現できる数値モデルを用いて排出削減効果の正確な評価を行なうとともに、脱硫、脱硝などの防除装置の設置を拡大していく必要がある。

引用文献

1) Jacob, D. J. : Chemistry of OH in remote clouds and its role in the production of formic acid and peroxy-

nosulfate, *J. Geophys. Res.*, **91** (1986), 9807—9826.

2) Wesely, M. L. and Hicks, B. B. : Some factors that affect the deposition rates of sulfur dioxide and similar gases on vegetation, *J. Air Pollut. Control Ass.*, **27** (1977), 1110—1116.

3) Atkinson, R., Lloyd, A. C. and Wingel, L. : An updated chemical mechanism for hydrocarbons/NO_x/SO₂ photo-oxidations suitable for inclusion in atmospheric simulation models, *Atmospheric Environment* (1981), **16**, 1341—1355.

4) Calvert, J. G. and Stockwell, W. R. : Acid precipitation Series, Vol. 3 (1983), Elsevier.

5) Stelson, A. W. and Seinfeld, J. H. : Relative humidity and pH dependence of the vapor pressure of ammonium nitrate-nitric acid solutions at 25°C, *Atmos. Environment*, **16** (1982), 983—1000.

6) Chameides, W. L. and Davis, D. D. : The free radical chemistry of cloud droplets and its impact upon the composition of rain, *J. Geophys. Res.*, **87** (1982), 4863—4877.

7) Kurita, H. and Ueda, H. : Long-range transport of air pollution under light gradient wind conditions, In *Encyclopedia of Environmental Control*, P. N. Chermisinoff ed., Vol. 3 (1990), pp.500—569, Gulf Pub. Co.

8) Chang, Y. S., Carmichael, G. R., Kurita, H. and Ueda, H. : Formation of photochemical oxidants in central Japan, *Atmos. Environment*, **23** (1989), 363—393.

9) 植田洋匡 : 酸性雨のシミュレーション, シミュレーション, **8** (1989), 142—148.

10) 植田洋匡 : 酸性雨, 地球規模の環境問題< I >, 大来佐武郎 (編) (1990), pp.185—244, 中央法規.

